整理番号 200409079

発送番号 374332 1/ 発送日 平成19年 8月 7日

期限19.11.-7

拒絕理由通知書

2354

特許出願の番号

特願2004-309792

起案日

平成19年 7月26日

特許庁審査官

山本 信平

4 1 3 1 3 T 0 0

特許出願人代理人

小田島 平吉 様

適用条文

第29条第1項、第29条第2項、第36条

この出願は、次の理由によって拒絶をすべきものである。これについて意見があれば、この通知書の発送の日から3か月以内に意見書を提出して下さい。

## 理 由

理由 a. この出願の下記の請求項に係る発明は、その出願前に日本国内又は外国において、頒布された下記の刊行物に記載された発明又は電気通信回線を通じて公衆に利用可能となった発明であるから、特許法第29条第1項第3号に該当し、特許を受けることができない。

理由b. この出願の下記の請求項に係る発明は、その出願前に日本国内又は外国において、頒布された下記の刊行物に記載された発明又は電気通信回線を通じて公衆に利用可能となった発明に基いて、その出願前にその発明の属する技術の分野における通常の知識を有する者が容易に発明をすることができたものであるから、特許法第29条第2項の規定により特許を受けることができない。

記 (引用文献等については引用文献等一覧参照)

- ·請求項1~2
- ·理由 a, b
- ·引用文献等 1
- ・備考

本願の請求項1~2に係る発明と引用文献1に記載された発明とを比較すると、引用文献1に記載された発明の「ガソリン機関」(【請求項10】参照)、「金属化合物を含む少なくとも1つの添加剤を添加する燃料」(【請求項1】参照)、「Mn化合物」(段落【0011】参照)は、それぞれ本願の請求項1~2に係る発明の「火花点火内燃機関」、「金属含有化合物を含有する添加剤を含んで成る燃料」、「マンガン含有化合物」に相当する。したがって、両者は、本願の請求項1~2に係る発明が「金属含有化合物が燃焼室内沈積物剥離を減少させ



発送番号 374332 2/ 発送日 平成19年 8月 7日

るに有効な量で送り込まれる」、及び「燃焼室沈積物を減少させる方法」である のに対し、引用文献1に記載された発明では、この点が明らかでない点で一応相 違する。

しかしながら、引用文献1に記載された発明においても、マンガン含有化合物が含有された燃料を火花点火内燃機関で燃焼させることによって、多少なりとも燃焼室沈積物を減少させていたと考えられるので、上記の点について実質的に差異があるとは認められない。

- ・請求項3
- ·理由 a, b
- · 引用文献等 1
- ・備考

用文献1に記載された発明の「ガソリン機関」(【請求項10】参照)、「金属化合物を含む少なくとも1つの添加剤を添加する燃料」(【請求項1】参照)、「Mn化合物」(段落【0011】参照)は、それぞれ本願の請求項3に係る発明の「火花点火内燃機関」、「金属含有化合物を含有する添加剤を含んで成る燃料」、「マンガン含有化合物」に相当する。したがって、両者は、本願の請求項3に係る発明が「金属含有化合物がコールドスタート排気を減少させるに有効な量で送り込まれる」、及び「コールドスタート排気を減少させる方法」であるの

本願の請求項3に係る発明と引用文献1に記載された発明とを比較すると、引

しかしながら、引用文献1に記載された発明においても、マンガン含有化合物が含有された燃料を火花点火内燃機関で燃焼させることによって、多少なりとも燃焼室沈積物が減少され、それによって燃焼室の気密性が向上し、クランキング時間が減少することによってコールドスタート排気を減少させていたと考えられるので、上記の点について実質的に差異があるとは認められない。

に対し、引用文献1に記載された発明では、この点が明らかでない点で一応相違

## 引用文献等一覧

1. 特開2000-027712号公報

理由 c. この出願は、発明の詳細な説明の記載が下記の点で、特許法第36条 第4項第1号に規定する要件を満たしていない。

記

「・・・添加するマンガンの量をマンガンが1リットル当たり約1から約50mgであるようにしてもよい。」(段落【0021】参照)と記載されているが

発送番号 374332 3/E 発送日 平成19年 8月 7日

、燃焼室沈積物及びコールドスタート排気を減少するために有効なマンガンの量に関する試験結果についての記載がなく、上記のマンガン量の範囲全体で、有効に燃焼室沈積物、及びコールドスタート排気を減少させることができるかどうか不明である。

また、「・・・試験番号2:MMT添加剤を添加・・・」(段落【0025】 参照)と記載されているが、MMT添加剤を1リットル当たり何mg添加したの かが記載されていない。

よって、この出願の発明の詳細な説明は、当業者が請求項1~3に係る発明を 実施することができる程度に明確かつ十分に記載されたものでない。

# 先行技術文献調査結果の記録

・調査した分野 IPC F02M25/00 F01N3/02 C10L1/30

この先行技術文献調査結果の記録は拒絶理由を構成するものではありません。

この拒絶理由通知の内容に関するお問い合わせ、または面接のご希望がございましたら下記までご連絡下さい。

特許審查第2部 動力機械 島倉理

TEL. 03 (3581) 1101 内線 3393

FAX. 03 (3580) 6904

### (19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2000-27712 (P2000-27712A)

(43)公開日 平成12年1月25日(2000.1.25)

(51) Int.Cl.7	識別記号		FΙ				テーマコード(参考)	
F02M 25/0	0		F 0 2 M	25/00		Z		
B01D 53/5	0		F 0 1 N	3/02		301H		
53/8	1			3/08		ZABA		
F01N 3/0	2 301			3/28		301C		
3/0	8 ZAB		B01D	53/34		124Z		
		審査請求	有 請习	対項の数10	雷雷	(全 3 頁)	最終頁に続く	
(21)出願番号	<b>特願平11-150375</b>		(71)出願	(71)出願人 599034309				
				ダイム	ラーク	ライスラー・	アクチエンゲゼ	
(22)出顯日	平成11年4月21日(1999.4.21)			ルシヤ	フト			
				Dai	mle	rChrys	ler AG	
(31)優先権主張番号 19818536.7				ドイツ	連邦共	和国シユトウ	ツトガルト・エ	
(32)優先日 平成10年4月24日(199		4.24) ツブレシコト			シコト	トラーセ225		
(33)優先権主張国	ドイツ (DE)		(72)発明	者 ホルゲ	ル・フ	ライシエル		
				ドイツ	連邦共	和国パート・	リーベンツエ	
				ル・ヴ	アイル	・デル・シユ	タツテル・シユ	
				トラー	セ23			
			(74)代理	人 100062	317			
		#P/		弁理士	中平	治		
							最終頁に続く	

#### (54) 【発明の名称】 排気ガス中のSO2又はSO3を中和する方法

#### (57)【要約】

【目的】 内燃機関の排気ガスの確実な脱硫を可能にする、排気ガス中のSO。又はSO。を中和する方法を提供する。

【構成】 燃料で作動せしめられる自動車の排気ガス中のSO₂又はSO₃を中和する方法では、排気ガス中に固体の形で存在しかつ燃料の燃焼の際安定な硫酸塩を形成しかつ燃料中で溶解可能な1つ又は複数の金属化合物を含む少なくとも1つの添加剤を燃料に添加する。本発明によれば、無機化合物及び有機金属化合物から成る群から成る1つ又は複数の金属化合物を含む添加剤を使用し、酸化性雰囲気中で燃料の燃焼を行う。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料で作動せしめられる自動車の内燃機関の排気ガス中のSO2又はSO3を中和する方法であって、排気ガス中に固体の形で存在しかつ燃料の燃焼の際安定な硫酸塩を形成しかつ燃料中で溶解可能な1つ又は複数の金属化合物を含む少なくとも1つの添加剤を燃料に添加するものにおいて、無機化合物及び有機金属化合物から成る群から成る1つ又は複数の金属化合物を含む添加剤を使用し、酸化性雰囲気中で燃料の燃焼を行うことを特徴とする、排気ガス中のSO2又はSO3を中10和する方法。

【請求項2】 金属化合物が無機又は有機酸の塩であることを特徴とする、請求項1に記載の方法。

【請求項3】 金属化合物として無機又は有機金属錯化物を使用することを特徴とする、請求項1又は2に記載の方法。

【請求項4】 二価金属を持つ金属化合物を使用することを特徴とする、請求項1~3の1つに記載の方法。

【請求項5】 金属化合物に含まれる金属をBa, Mg, Ca, Sr, Mo, Cd, Pb, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni及びZnから成る群から選ぶことを特徴とする、請求項4に記載の方法。

【請求項6】 生じる硫酸塩を粒子フイルタ中で捕捉することを特徴とする、請求項1~5の1つに記載の方法。

【請求項7】 粒子フイルタをフイルタカートリツジの 形で使用することを特徴とする、請求項6に記載の方 法。

【請求項8】 粒子フイルタを自動車の排気系に設けることを特徴とする、請求項7又は8に記載の方法。

【請求項9】 粒子フイルタを最終消音器に設けることを特徴とする、請求項9に記載の方法。

【請求項10】 NO、貯蔵触媒を持つ乗用車及び商用車両のガソリン機関及びデイーゼル機関に使用することを特徴とする、請求項1~9の1つに記載の方法。

【発明の詳細な説明】

 $BaCO_3 + 2NO_2 + 1/2O_2 \rightarrow Ba(NO_3)_2 + CO_2 \qquad (\lambda \ge 1)$ 

30

2. 硫黄は三酸化硫黄として炭酸バリウムと反応して硫※ ※酸バリウムになる。

$$B a CO_3 + SO_3 \rightarrow B a SO_4 + CO_2 \qquad (\lambda \ge 1)$$

それにより窒素酸化物の吸収ポテンシャルは失われ、触 媒が作用を失う。

【0005】しかし三酸化硫黄が排気ガス中に存在すると、非常に安定な硫酸バリウムになる反応が有利に進行する。硫黄の燃焼の際燃料及び油からまず二酸化硫黄のみが生じるが、ここで必要な空気/燃料比(λ≥1)では、二酸化硫黄が酸化されて三酸化硫黄になり、この反応は内燃機関の温度上昇と共に抑制される。しかし乗用車のガソリン機関及び乗用車及び商用車両のデイーゼル機関における観察から、硫酸塩の形成は実際上抑制されないことがわかった。これは、比較的高い温度でも三酸50

\* [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、排気ガス中に固体の形で存在しかつ燃料の燃焼の際安定な硫酸塩を形成しかつ燃料中で溶解可能な1つ又は複数の金属化合物を含む少なくとも1つの添加剤を燃料に添加する、燃料で作動せしめられる自動車の内燃機関の排気ガス中のSO。又はSO。を中和する方法に関する。

【0002】内燃機関の排気ガスは、常にSO。又はSO。の形で硫黄を含んでいる。それにより望ましくない硫酸の排気ガスが形成される可能性がある。更にこれらの硫黄化合物は、ガソリン機関及びディーゼル機関の触媒による排気ガス浄化の際有害に作用する。従って排気ガスからのこれらの硫黄酸化物の除去が望ましい。

【0003】内燃機関特に希薄混合気機関及びガソリン機関における窒素酸化物の除去のため可能な代案とみなされていわゆるNO、貯蔵触媒に関連して、特別な問題が生じる。即ちNO、貯蔵触媒は、大体において酸化アルミニウムに混合されるバリウム化合物又はストロンチウム化合物から成っている。しかしこの触媒及び使用されるNO、用貯蔵材料の動作態様から、排気ガス中の硫黄に伴う問題が認められる。これは次の考察からわかる。

【0004】  $\lambda$  値は、周知のように内燃機関の燃焼空間へ導入される空気又は酸素の量と完全燃焼のため理論的に必要な空気又は酸素の量との比の尺度である。内燃機関では、 $\lambda$  値は全酸素量とシリンダ内で空気一燃料混合気の完全燃焼に必要な酸素量との比を示す。三元触媒により排気ガスを浄化される内燃機関は、最適な排気ガス浄化を可能にするため、1 の $\lambda$  値で、またN の、貯蔵触媒はを使用する場合 1 より大きいか又は1 に等しい $\lambda$  値で作動せしめられねばならない。しかし大きい空気/燃料比即ち酸化性雰囲気( $\lambda$   $\geq$  1 )では、N の、貯蔵触媒中で2 つの反応が互いに競合する。

1. 窒素酸化物NO。は所望の吸収反応で炭酸バリウム と反応して硝酸バリウムになる。

化硫黄が充分形成されることの兆候である。硫黄の主要な量は燃料に由来するので(品質に応じて  $5\sim700$  p p m)、NO、貯蔵触媒の寿命はそれにより限定される。

[0006]

【従来の技術】火力発電所及びごみ燃焼設備における燃焼の際、炭酸アルカリ及び炭酸アルカリ土類、酸化アルカリ土類のような硫黄結合物質を供給することは公知である(ドイツ連邦共和国の特許第3306795号明細書、特許出願公開第3234315号明細書、特許第3840212号明細書)。更に二酸化硫黄及び三酸化硫

4

黄の放出を減少するため、このような燃焼の際有機酸の 金属塩を供給することも公知である(特開昭50-11 7805号及び特開昭54-81536号公報)。しか しこれらの手段は内燃機関に転用されない。

#### [0007]

【発明の解決しようとする課題】本発明の課題は、内燃機関の排気ガスの確実な脱硫を可能にする、最初にあげた種類の方法を提供することである。

#### [0008]

【課題を解決するための手段】この課題を解決するため 10 本発明によれば、無機化合物及び有機金属化合物から成る群から成る1つ又は複数の金属化合物を含む添加剤を使用し、酸化性雰囲気中で燃料の燃焼を行う。

【0009】本発明によれば、二酸化硫黄及び三酸化硫 黄は燃焼の際生じる安定な硫酸塩の形で結合され、これ らの硫酸塩は固体粒子の形で排気ガスと共に内燃機関か ら排出される。その際金属硫酸塩粒子は、排気系例えば 消音器に沈積するか又は排気管から吹出される。こうし て排気ガスの確実な脱硫が行われる。それにより特にN 〇、貯蔵触媒が作用を失うのを防止される。

【0010】燃料中で溶解可能な金属化合物は、なるべく無機又は有機金属化合物例えば無機又は有機酸の塩及び無機又は有機金属酸化合物である。

【0011】安定な硫酸塩が形成される条件は、特にMg、Ca、Sr、Mo、Cd、Pbのような二価金属、及びV、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu及びZnのような二価遷移金属の化合物によって満たされる。これらの金属化合物は燃料の燃焼の際一般に熱分解され、その際金属酸化物が形成され、これらの金属酸化物が再びSO。又はSO。と反応して、安定な硫酸塩になる。

【0012】本発明による方法の発展では、生じる硫酸塩が粒子フイルタ中で捕捉される。これには特に容易に変換可能なフイルタカートリツジの形の粒子フイルタが適している。粒子フイルタ又はフイルタカートリツジは\*

\* 排気系例えば自動車では最終消音器にもうけられ、そこでは粒子フイルタに容易に到達可能であり、従って容易 に組込み又は交換可能である。

【0013】本発明による添加剤は、乗用車及び商用車両のガソリン機関又はデイーゼル機関に使用するのに特によく適している。

【0014】本発明の実施例を以下に説明する。

[0015]

(3)

【実施例】好ましい添加剤はバリウムの塩又は錯化合物である。バリウムはほぼ定量的に反応して硫酸バリウムになり、存在する硫黄が硫酸バリウム粒子の形で沈殿するようにする。

【0016】酸化性雰囲気 (λ≥1) では、燃料中に溶解可能なバリウム化合物から酸化バリウムが形成される。同時に燃料に含まれる硫黄が酸化されて、二酸化硫黄又は三酸化硫黄になる。燃焼中に酸化バリウムが二酸化硫黄又は三酸化硫黄と反応して、安定な硫酸バリウムとなる。

BaO+SO<sub>3</sub> →BaSO<sub>4</sub>

20 BaO+SO2+ $1/2O_2 \rightarrow$ BaSO<sub>4</sub>

【0017】硫酸バリウムは粒子の形で内燃機関から吹出されて、排気ガスへ達する。硫酸バリウムは排気装置内で沈積するか、吹出される。排気系例えば自動車の最終消音器へ粒子フイルタが設けられていると、硫酸バリウムを適切に捕捉することもできる。

【0018】上述した反応は、安定な硫酸塩を形成するすべての2価金属に通用する。燃料例えばガソリン燃料又はデイーゼル燃料に溶解可能なすべての金属は、なるべく無機又は有機金属錯化合物の形で、特に有機金属錯30塩の形で、二酸化硫黄又は三酸化硫黄の中和に適している。これは例えばBa, Mg, Ca, Sr, Mo, Cd, Pb, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu及びZnに、無機又は有機酸の塩の形で当てはまる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

FO1N 3/28 3 0 1

FΙ

テーマコード(参考)

(72) 発明者 エーベルハルド・ヒルシュ

ドイツ連邦共和国マウルブロン・クニツト リンゲル・シユタイゲ14 ※ ※(72)発明者 カルルーハインツ・テイーマン ドイツ連邦共和国コルプ・アイヒエンドル フヴエーク1